

JP2001163640A

2001-6-19

## Bibliographic Fields

## Document Identity

(19)【発行国】

日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報(A)

(11)【公開番号】

特開2001-163640(P2001-163640  
A)

(43)【公開日】

平成13年6月19日(2001. 6. 19)

## Public Availability

(43)【公開日】

平成13年6月19日(2001. 6. 19)

## Technical

(54)【発明の名称】

合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

(51)【国際特許分類第7版】

C03C 27/12

B32B 17/10

27/30

C08K 3/08

C08L 29/14

C09J129/14

167/00

【FI】

C03C 27/12 D

F

B32B 17/10

27/30

C08K 3/08

C08L 29/14

C09J129/14

167/00

【請求項の数】

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication 2001- 163640 (P2001-  
163640A)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

Heisei 13\*June 19\* (2001.6.19)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

Heisei 13\*June 19\* (2001.6.19)

(54) [Title of Invention]

interlayer for laminated glass and laminated glass

(51) [International Patent Classification, 7th Edition]

C03C27/12

B32B17/10

27/30

C08K3/08

C08L29/14

C09J129/14

167/00

【FI】

C03C27/12D

F

B32B17/10

27/30

C08K3/08

C08L29/14

C09J129/14

167/00

[Number of Claims]

JP2001163640A

2001-6-19

5

【出願形態】

OL

【全頁数】

6

【テーマコード(参考)】

4F1004G0614J0024J040

【Fターム(参考)】

4F100 AB09C

AB09H AG00

A AG00D AK

23C AK41B A

K42 BA03 BA

04 BA07 BA1

0A BA10C B

A10D GB08 G

B33 JB20C JK

06C JL09 JL1

1 JN01 YY00

C 4G061 AA1

0 AA25 BA01

BA02 CB05

CB16 CB19 C

D02 CD18 4J0

02 BE061 EG0

27 EG036 FD0

20 FD206 FD2

07 GJ01 GL00

GN00 4J040

DD071 ED001

HB24 JA09 L

A06 LA07 LA

10 MA05

## Filing

【審査請求】

未請求

(21)【出願番号】

特願平11-311241

(22)【出願日】

平成11年11月1日(1999. 11. 1)

## Foreign Priority

(31)【優先権主張番号】

特願平11-281578

5

[Form of Application]

OL

[Number of Pages in Document]

6

[Theme Code (For Reference)]

4F1004G0614J0024J040

[F Term (For Reference)]

4F100AB09CAB09HAG00AAG00DAK23CAK41BA K42BA 03BA 04BA 07BA 10ABA

10CBA 10DGB 08GB 33JB20CJK06CJL09JL11JN01YY00C4G061AA10AA25BA 01BA

02CB05CB16CB19CD 02CD 184J002BE061EG 027EG

036FD020FD206FD207GJ01GL00GN004J040DD071ED001HB24JA09LA06LA07LA10MA05

[Request for Examination]

Unrequested

(21) [Application Number]

Japan Patent Application Hei 11- 311241

(22) [Application Date]

1999 November 1 day (1999.11.1)

(31) [Priority Application Number]

Japan Patent Application Hei 11- 281578

JP2001163640A

2001-6-19

(32)【優先日】

平成11年10月1日(1999. 10. 1)

(32) [Priority Date]

1999 October 1 day (1999.10.1)

(33)【優先権主張国】

日本(JP)

(33) [Priority Country]

Japan (JP)

**Parties****Applicants**

(71)【出願人】

【識別番号】

000002174

【氏名又は名称】

積水化学工業株式会社

【住所又は居所】

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

(71) [Applicant]

[Identification Number]

000002174

[Name]

Sekisui Chemical Co. Ltd. (DB 69-053-6024)

[Address]

Osaka Prefecture Osaka City Kita-ku Nishi Tenma 2-4-4

**Inventors**

(72)【発明者】

【氏名】

小幡 真稔

【住所又は居所】

滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積水化学工業株式会社内

(72) [Inventor]

[Name]

Obata \*Minoru

[Address]

Shiga Prefecture Koka-gun Mizuguchi-cho Izumi  
1259Sekisui Chemical Co. Ltd. (DB 69-053-6024) \***Abstract**

(57)【要約】

【課題】

透明性、耐候性、接着性及び耐貫通性等の合わせガラスとして必要な基本性能に優れ、且つ、湿度の高い雰囲気下に放置された場合でも、合わせガラスの周縁部に白化現象を起こすことが少ない合わせガラスを得るに適する合わせガラス用中間膜及びその中間膜を用いた合わせガラスを提供することを課題とする。

【解決手段】

可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜とポリエステル樹脂膜とからなり、最外層が可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜である合わせガラス用中間膜であって、該中間膜を用いた合わせガラスにおいて、ガラスと可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜との90度ピール接着力が20 deg Cにおいて40~80N/cmであることを特徴とする合わせガラス用中間膜及び合わせガラス。

(57) [Abstract]

[Problems to be Solved by the Invention]

It is superior in necessary basic performance as transparency, weather resistance, adhesiveness, and penetration resistance or other laminated glass at same time, laminated glass whose it is few to cause whitening phenomenon in the periphery of laminated glass, it is obtained it designates that laminated glass which uses interlayer for laminated glass and its interlayer film which are suited is offered as problem even with when it is left under atmosphere where humidity is high.

[Means to Solve the Problems]

It consists of plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film and polyester resin film, with interlayer for laminated glass where outermost layer is plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film, in laminated glass which uses said interlayer film, 90 degrees peel adhesion strength of glass and plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film interlayer for laminated glass and laminated glass, which designate that they are 40~80 N/cm in 20 deg C as feature

JP2001163640A

2001-6-19

## Claims

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜とポリエステル樹脂膜とからなり、最外層が可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜である合わせガラス用中間膜であって、該中間膜を用いた合わせガラスにおいて、ガラスと可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜との 90 度ピール接着力が 20 deg C において 40~80N/cm であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

## 【請求項 2】

可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜が、マグネシウムを 40ppm 以下含有し、且つ、カリウムを 100ppm 以下含有する可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜であることを特徴とする請求項 1 記載の合わせガラス用中間膜。

## 【請求項 3】

可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜に用いられるポリビニルアセタール樹脂が、ブチラール化度 60~70 モル%のポリビニルブチラール樹脂であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の合わせガラス用中間膜。

## 【請求項 4】

請求項 1~3 いずれか 1 項記載の合わせガラス用中間膜であって、該中間膜を少なくとも一対のガラス間に介在させ一体化させてなる合わせガラスを、50 deg C、相対湿度 95%の雰囲気下に 4 週間放置した際の、合わせガラス周縁部からの白化距離が 4mm 以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

## 【請求項 5】

少なくとも一対のガラス間に、請求項 1~4 いずれか 1 項記載の合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする合わせガラス。

## Specification

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、合わせガラス用中間膜、及びその中間膜を用いた合わせガラスに関する。

## 【0002】

## [Claim (s)]

## [Claim 1]

It consists of plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film and polyester resin film, with interlayer for laminated glass where outermost layer is plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film, in laminated glass which uses said interlayer film, 90 degrees peel adhesion strength of glass and plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film interlayer for laminated glass, which designates that they are 40 - 80 N/cm in 20 deg C as feature

## [Claim 2]

interlayer for laminated glass, which is stated in Claim 1 which designates that it is a plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film where plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film, 40 ppm or less contains magnesium, at same time, 100 ppm or less contains potassium as feature

## [Claim 3]

polyvinyl acetal-based resin which is used for plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film, interlayer for laminated glass, which is stated in Claim 1 or 2 which designates that it is a polyvinyl butyral resin of degree of butyral formation 60~70mole % as feature

## [Claim 4]

With interlayer for laminated glass which is stated in Claim 1 ~3any one claim, said interlayer film lying betweenat least between glass of pair, integration doing, laminated glass which becomes, under atmosphere of 50 deg C, relative humidity 95% 4 weeks case where itleaves, interlayer for laminated glass, which designates that whitening distance from laminated glass periphery is 4 mm or less as feature

## [Claim 5]

At least between glass of pair, interlayer for laminated glass which is stated in Claim 1 ~4any one claim lying between, integration doing, laminated glass, which designates that it becomes as feature

## [Description of the Invention]

## [0001]

## [Technological Field of Invention]

this invention regards laminated glass which uses interlayer for laminated glass, and its interlayer film.

## [0002]

JP2001163640A

2001-6-19

## 【従来の技術】

従来より、合わせガラスは、自動車用、建築用等の窓ガラスとして広く使用されている。

この合わせガラスは、少なくとも一対のガラス間に、可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラル樹脂のような可塑化ポリビニルアセタール樹脂を製膜してなる合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させて製せられたものが代表的である。

このような合わせガラスは、透明性、耐候性および接着性がよく、さらに耐貫通性に優れている。

即ち、これに衝撃が加えられるとガラスは破損するものの、ガラス間に介在させた中間膜は容易には破損せず、又、ガラスは破損後においても中間膜に貼着したままであるため、その破片が飛散することは少なく、従って、例えば自動車や建築物の内部にある人体がガラスの破片により傷害を受けることを防止する機能を有する。

## 【0003】

しかし、上記合わせガラスが湿度の高い雰囲気下に放置された場合、合わせガラスの周縁部では、通常中間膜が直接環境空気と接触しているため、周縁部の中間膜が吸湿により白化現象を起こし易くなるという耐湿性上の問題が発生する。

即ち、この耐湿性の性能については、周縁部端部が露出する自動車等のサイドガラスのみならず、フロントガラスにおいても、オープンエッジ化等に伴い、高い品質水準が要求されてきている。

## 【0004】

上記問題点に対応するため、例えば、特開平 7-41340 号公報では、「ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤、カルボン酸金属塩及び直鎖脂肪酸を含有する樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜」が開示されている。

しかし、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスでは、耐湿試験後の周辺部の白化は低減されるものの、依然として十分ではない。

また、金属塩の添加量を低減すると、白化現象は改善されるが、耐貫通性が低下してしまう。

## [Prior Art]

From until recently, laminated glass is used widely as automotive, construction or other window glass.

As for this laminated glass, at least between glass of pair, film manufacture doing plasticized polyvinyl acetal resin tar resin like polyvinyl butyral resin which is plasticized by plasticizer the interlayer for laminated glass which becomes lying between, integration doing, those which are reproduced are representative.

As for laminated glass a this way, transparency, weather resistance and adhesiveness are good, furthermore are superior in penetration resistance.

Namely, when it can add to this impact, as for glass although breakage it does, as for interlayer film which lies between between the glass breakage does not do easily, as for also, glass because adhering it continues to do in interlayer film in after breakage, fragment as for scatter doing to be little, therefore, human body which is inside of for example automobile and construction has function which prevents fact that damage is received with fragment of the glass.

## 【0003】

But, when it is left under atmosphere where above-mentioned laminated glass humidity is high, with periphery of laminated glass, because contacts with environment air usually interlayer film directly, problem on moisture resistance that occurs interlayer film of periphery whitening phenomenon is likely to happen depending upon absorbed moisture.

Namely, automobile or other side glass which periphery end exposes concerning performance of the this moisture resistance, furthermore, regarding windshield, high quality level has been required attendant upon open edge conversion etc.

## 【0004】

Because it corresponds to above-mentioned problem, with for example Japan Unexamined Patent Publication Hei 7-41340 disclosure, "interlayer for laminated glass which consists of resin composition which contains polyvinyl acetal-based resin and the plasticizer, metal carboxylate and straight chain aliphatic acid" is disclosed.

But, with laminated glass which uses above-mentioned interlayer for laminated glass, as for the whitening of periphery after humidity resistance test although it is decreased, it is not fully as still.

In addition, when addition quantity of metal salt is decreased, whitening phenomenon is improved, but penetration resistance decreases.

JP2001163640A

2001-6-19

特に、自動車等のフロントガラスにおいては、耐貫通性の品質水準を維持することが必要不可欠であるため、金属塩の添加量を低減することは難しいとされてきた。

また、自動車等のサイドガラスにおいても、防犯等の目的でかなりの水準の耐貫通性が要求されてきている。

本発明者は、耐貫通性の水準を維持しながら、金属塩の添加量を低減することにより、合わせガラスの性能が長期に安定して優れるとともに、合わせガラスを製造する際においても、中間膜とガラスとの間で安定した接着力が得られ、且つ発泡率を抑えることができるため歩留まりが向上することができる方法を見出したものである。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記従来の問題点を解決するため、透明性、耐候性、接着性及び耐貫通性等の合わせガラスとして必要な基本性能に優れ、且つ、湿度の高い雰囲気下に放置された場合でも合わせガラスの周縁部に白化現象を起こすことが少ない合わせガラスを得るに適する合わせガラス用中間膜及びその中間膜を用いた合わせガラスを提供することを課題とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】

請求項 1 に記載の発明(以下、発明 1 という)による合わせガラス用中間膜は、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜とポリエステル樹脂膜とからなり、最外層が可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜である合わせガラス用中間膜であって、該中間膜を用いた合わせガラスにおいて、ガラスと可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜との 90 度ピール接着力が 20 deg C において 40~80N/cm であることを特徴とする。

【0007】

請求項 2 に記載の発明(以下、発明 2 という)による合わせガラス用中間膜は、上記発明 1 による合わせガラス用中間膜において、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜が、マグネシウムを 40 ppm 以下で、且つ、カリウムを 100ppm 以下含有する可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜であることを特徴とする。

【0008】

Especially, because fact that quality level of penetration resistance is maintained regarding automobile or other windshield, is necessary essential, that addition quantity of the metal salt is decreased, it assumed that it is difficult.

In addition, regarding automobile or other side glass, penetration resistance of considerable level has been required with crime prevention or other objective.

As for this inventor, while maintaining level of penetration resistance, performance of laminated glass stabilizing in long period by decreasing addition quantity of the metal salt, as it is superior, when producing laminated glass, in, interlayer film and adhesion strength which is stabilized between glass are acquired, At same time because it is possible to hold down foaming ratio, it is something which discovers method where it can improve yield.

【0005】

【Problems to be Solved by the Invention】

this invention is superior in necessary basic performance as above-mentioned conventional Means to Solve the Problems, transparency, weather resistance, adhesiveness and penetration resistance or other laminated glass, at same time, laminated glass whose it is few even with when it is left under atmosphere where humidity is high to cause whitening phenomenon in periphery of laminated glass is obtained designates that the laminated glass which uses interlayer for laminated glass and its interlayer film which are suited is offered as a problem.

【0006】

【Means to Solve the Problems】

interlayer for laminated glass consists of plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film and polyester resin film with invention (Below, invention 1 you call) which is stated in Claim 1, with interlayer for laminated glass where outermost layer is the plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film, 90 degrees peel adhesion strength of glass and plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film designates that they are 40- 80 N/cm in 20 deg C as feature in laminated glass which uses said interlayer film.

【0007】

With invention (Below, invention 2 you call) which is stated in Claim 2 as for interlayer for laminated glass, with above-mentioned invention 1 in interlayer for laminated glass, plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film, magnesium with 40 ppm or less, at same time, it designates that it is a plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film which 100 ppm or less contains potassium as feature.

【0008】

JP2001163640A

2001-6-19

請求項 3 に記載の発明(以下、発明 3 という)による合わせガラス用中間膜は、上記発明 1 又は 2 による合わせガラス用中間膜において用いられるポリビニルアセタール樹脂が、ブチラール化度 60~70 モル%のポリビニルブチラール樹脂であることを特徴とする。

【0009】

請求項 4 に記載の発明(以下、発明 4 という)による合わせガラス用中間膜は、上記発明 1~3 いずれかによる合わせガラス用中間膜を、少なくとも一対のガラス間に介在させ一体化させてなる合わせガラスを、50 deg C、相対湿度 95%の雰囲気下に 4 週間放置した際の、合わせガラス周縁部からの白化距離が 4mm 以下であることを特徴とする。

【0010】

請求項 5 に記載の発明(以下、発明 5 という)による合わせガラスは、少なくとも一対のガラス間に、上記発明 1~4 いずれかによる合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする。

以下、本発明を詳しく説明する。

【0011】

発明 1 による合わせガラス用中間膜(以下、単に中間膜という)においては、この中間膜を用いた合わせガラスにおいて、ガラスと可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜との 90 度ピール接着力が 20 deg C において 40~80N/cm であることが必要である。

これは、発明 1 の中間膜が、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜と、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜よりも引張強度の大きいポリエステル樹脂膜とからなるため、耐貫通性能が向上することにより、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜のみからなる従来の中間膜を用いた場合の上記 90 度ピール接着力の水準である 20~40N/cm の範囲を上げることが可能となったことによるものであり、この範囲を外れると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下する。

【0012】

発明 1 による中間膜において、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜に用いられるポリビニルアセタール樹脂としては、一般に合わせガラス用中間膜の主成分として用いられるポリビニルアセタール樹脂が使用でき、より具体的には、ブチラール化度が 60~70 モル%のポリビニルブチラール樹脂(以下、PVB という)が好適に使用さ

With invention (Below, invention 3 you call ) which is stated in Claim 3 as for interlayer for laminated glass ,with above-mentioned invention 1 or 2 polyvinyl acetal-based resin which is used in interlayer for laminated glass , designates that it is a polyvinyl butyral resin of degree of butyral formation 60~70mole % as feature.

【0009】

interlayer for laminated glass , with above-mentioned invention 1 - 3 any interlayer for laminated glass ,lying between at least between glass of pair , integration doing, laminated glass which becomes, under atmosphere of 50 deg C, relative humidity 95% 4 weeks case where it leaves, designates that whitening distance from laminated glass periphery is 4 mm or less as feature with invention (Below, invention 4 you call ) which is stated in Claim 4 .

【0010】

laminated glass , between glass of pair , interlayer for laminated glass lying between atleast with above-mentioned invention 1 - 4 any , integration doing, designates that it becomes as feature with invention (Below, invention 5 you call ) which is stated in Claim 5 .

Below, this invention is explained in detail.

【0011】

Regarding interlayer for laminated glass (Below, simply interlayer film you call ) with invention 1, 90 degrees peel adhesion strength of glass and the plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film , it is necessary in laminated glass which uses this interlayer film , to be 40 -80 N/cm in 20 deg C.

As for this, because interlayer film of invention 1, it consists of the polyester resin film where tensile strength is large in comparison with plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film and the plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film , When in thing, it deviates from this range by fact that it has become possible to increase range of 20 - 40 N/cm which are a level of above-mentioned 90 degrees peel adhesion strength when conventional interlayer film which consists of only plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film due to fact that penetration resistance improves, is used, the penetration resistance of laminated glass which is acquired decreases.

【0012】

With invention 1 as polyvinyl acetal-based resin which is used for plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film in the interlayer film , generally be able to use polyvinyl acetal-based resin which is used as main component of interlayer for laminated glass , more concretely, degree of butyral formation polyvinyl butyral resin (Below, PVB you

JP2001163640A

2001-6-19

れる。

ブチラール化度が60モル%未満では、後述する可塑剤との相溶性が低下することがあり、ブチラール化度が70モル%を超えると、PVBの製造プロセスが長時間を要することがある。

このブチラール化度は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定することができる。

【0013】

また、上記PVBの平均重合度は、1000~2000であるものが好ましい。

平均重合度が1000未満では、得られる合わせガラスの耐貫通性等が低下することがあり、平均重合度が2000を超えると、中間膜の製造が困難となることがある。

この平均重合度は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定することができる。

【0014】

発明1による中間膜において、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜に用いられる可塑剤としては、特に限定されず、一般に中間膜に用いられるもの、例えば、トリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート(3GO)、トリエチレングリコールジ2-エチルブチレート(3GH)、ジヘキシルアジベート(DHA)、テトラエチレングリコールジヘプタノエート(4G7)、テトラエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート(4GO)等が挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が好適に用いられる。

【0015】

上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜に用いられる可塑剤の添加量は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して20~60重量部であるのが好ましい。

【0016】

発明1による中間膜において用いられるポリエステル樹脂膜は、特に限定されず、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)樹脂膜が好適に用いられる。

また、このPET樹脂膜に金属微粒子を蒸着して断熱性を付与する等の機能性を持たせることもできる。

call) of 60 - 70 mole % is used for ideal.

When degree of butyral formation under 60 mole %, are times when compatibility of plasticizer which it mentions later decreases, degree of butyral formation exceeds 70 mole %, there are times when production process of PVB requires lengthy .

Conforming to for example JIS K6728 "Testing Methods for Polyvinyl Butyral" test method \*, it can measure this degree of butyral formation .

【0013】

In addition, as for average degree of polymerization of above-mentioned PVB, 1000 -2000 those which are are desirable.

When average degree of polymerization under 1000, are times when penetration resistance etc of laminated glass which is acquired decreases, average degree of polymerization exceeds 2000, there are times when production of interlayer film becomes difficult.

Conforming to for example JIS K6728 "Testing Methods for Polyvinyl Butyral" test method \*, it can measure this average degree of polymerization .

【0014】

With invention 1 those which especially are not limited as plasticizer which is used for plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film in interlayer film , are used for interlayer film generally. for example triethylene glycol di 2- ethyl hexanoate group (3 GO ), triethylene glycol di 2- ethyl butanoate (3 GH ), di hexyl adipate (DHA ), tetraethylene glycol di heptanoate (4 G7 ), you can list tetraethylene glycol di 2- ethyl hexanoate group (4 GO ), etc can use for ideal these one, two or more kinds .

【0015】

As for addition quantity of plasticizer which is used for above-mentioned plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film , it is desirable to be 20 - 60 parts by weight vis-a-vis polyvinyl acetal-based resin 100 parts by weight .

【0016】

With invention 1 polyester resin film which is used in interlayer film is not limited, especially can use for ideal for example polyethylene terephthalate layer rate (PET ) resin film .

In addition, vapor deposition doing metal fine particle in this PET resin film , it is possible also to be able to give or other functionality which grants insulating ability .



JP2001163640A

2001-6-19

【0017】

また、発明 1 による中間膜において、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜には、マグネシウム(Mg)を 40ppm 以下含有し、且つ、カリウム(K)を 100ppm 以下含有することが好ましい。

Mg の含有量が 40ppm を超えたり、K の含有量が 100ppm を超えると、高湿度雰囲気下での合わせガラス周縁部からの白化距離が大きくなってしまふことがある。

【0018】

発明 1 による中間膜において、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜に含有される接着剤調整剤は、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜に、Mg を 40ppm 以下含有し、且つ、K を 100ppm 以下含有するように添加されることが好ましい。

即ち、発明 1 による中間膜においては、ポリエステル樹脂膜を用いているので、耐貫通性の水準を維持しながら、上記接着剤調整剤の添加量を、上述したように抑えることができる。

【0019】

また、上記接着剤調整剤としては、特に限定されず、例えば、有機酸マグネシウム塩、有機酸カリウム塩等の有機酸金属塩等が挙げられ、酢酸マグネシウム、プロピオン酸マグネシウム、2-エチルブタン酸マグネシウム、2-エチルヘキサン酸マグネシウム等のカルボン酸マグネシウム塩が好ましく、炭素数が 1~28 のカルボン酸マグネシウム塩がより好ましい。

また、これらの 1 種もしくは 2 種以上が好適に用いられる。

【0020】

この接着剤調整剤には、さらに、他の接着剤調整剤として公知の(例えば、特願昭 49-27406 号)変成シリコンオイルを併用することもできる。

当該変性シリコンオイルとしては、例えば、エーテル変性シリコンオイル、エポキシ変性シリコンオイル、エステル変性シリコンオイル、アミン変性シリコンオイル等が挙げられ、これらは一般にポリシロキサンに、変性すべき化合物を反応せしめて得られる粘稠な液体である。

この変性シリコンオイルの添加量は、0.005~0.5 重量部が好ましく、0.02~0.2 重量部がより好ましい。

【0017】

In addition, with invention 1, magnesium (Mg) 40 ppm or less is contained in plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film in interlayer film, at same time, it is desirable 100 ppm or less to contain potassium (K).

When content of Mg exceeds 40 ppm, content of K exceeds 100 ppm, there are times when whitening distance from laminated glass periphery under high humidity atmosphere becomes large.

【0018】

adhesion strength regulation agent which is contained in plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film in interlayer film, in plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film, 40 ppm or less contains Mg with invention 1, at same time, as 100 ppm or less contained K, it is desirable to be added.

Namely, because polyester resin film is used with invention 1 regarding the interlayer film, while maintaining level of penetration resistance, above-mentioned way it can hold down addition quantity of above-mentioned adhesion strength regulation agent.

【0019】

In addition, especially it is not limited as above-mentioned adhesion strength regulation agent, can list for example organic acid magnesium salt, organic acid potassium salt or other organic acid metal salt etc, magnesium acetate, magnesium propionate \*\*, 2-ethyl butanoic acid magnesium, cetyl 2-ethylhexanoate magnesium or other carboxylic acid magnesium salt are desirable, carbon number carboxylic acid magnesium salt 1 - 28 is more desirable.

In addition, it can use for ideal these one, two or more kinds.

【0020】

Is possible also fact that (for example Japan Patent Application Sho 49-27406 number) modified silicon oil of public knowledge is jointly used furthermore, as other adhesion strength regulation agent to this adhesion strength regulation agent.

As this said modified silicon oil, you can list for example ether modified silicon oil, epoxy-modified silicon oil oil, ester-modified silicon oil, amine modified silicon oil etc, these generally in the polysiloxane, compound to be modified reacting, are viscous \* liquid which is acquired.

As for addition quantity of this modified silicon oil, 0.005 - 0.5 parts by weight are desirable, 0.02 - 0.2 parts by weight are more desirable.

JP2001163640A

2001-6-19

【0021】

また、発明 1 による中間膜において、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜には、本発明の課題達成を阻害しない範囲内で必要に応じて、中間膜の劣化を防止するための安定剤、酸化防止剤、耐候性や耐光性改善のための紫外線吸収剤等の各種添加剤の 1 種もしくは 2 種以上が含有されていてもよい。

【0022】

次に、発明 4 による中間膜は、上記発明 1~3 いずれかによる合わせガラス用中間膜を、少なくとも一対のガラス間に介在させ一体化させてなる合わせガラスを、50 deg C、相対湿度 95%の雰囲気下に 4 週間放置した際の、合わせガラス周縁部からの白化距離が 4mm 以下であることが必要である。

【0023】

即ち、発明 1 の中間膜において、90 度ピール接着力を 20 deg C において 40~80N/cm とすることにより、接着力調整剤としての金属塩の添加量を低減することができ、上記白化距離を 4mm 以下にすることができるのである。

【0024】

また、発明 5 による合わせガラスは、少なくとも一対のガラス間に、発明 1~4 いずれかによる合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることが必要である。

【0025】

上記ガラスの種類としては、特に限定されず、例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス等の各種無機ガラス又は有機ガラスが挙げられ、これらの 1 種もしくは 2 種以上が好適に用いられる。

また、ガラスの厚みは、特に限定されず、用途によって適宜選択されればよいが、実用的には 2.0~4.0mm が好ましい。

【0026】

【発明の実施の形態】

本発明をさらに詳しく説明するため以下に実施例を挙げるが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

【0027】

(実施例 1)

【0021】

In addition, stabilizer, antioxidant, weather resistance in order to prevent deterioration of the according to need, interlayer film inside range which does not achieve this invention problem the inhibition and one, two or more kinds of ultraviolet absorber or other various additives for light resistance improvement to plasticized polyvinyl acetal resin tar resin film, may be contained with invention 1 in interlayer film.

【0022】

Next, as for interlayer film, with above-mentioned invention 1 - 3 any interlayer for laminated glass, lying between at least between glass of pair, the integration doing, laminated glass which becomes, under atmosphere of 50 deg C, relative humidity 95% 4 weeks case where it leaves, it is necessary with invention 4 for whitening distance from laminated glass periphery to be 4 mm or less.

【0023】

Namely, it is possible, can designate above-mentioned whitening distance as 4 mm or less to decrease addition quantity of metal salt by making 40 - 80 N/cm in interlayer film of invention 1, 90 degrees peel adhesion strength in 20 deg C, as adhesion strength regulation agent.

【0024】

In addition, as for laminated glass, between glass of pair, the interlayer for laminated glass lying between at least with invention 1 - 4 any, integration doing, it is necessary with invention 5 to become.

【0025】

As types of above-mentioned glass, especially it is not limited, can list for example float sheet glass, polished sheet glass, mold sheet glass or other various inorganic glass or organic glass, can use for ideal these one, two or more kinds.

In addition, if thickness of glass is not limited and especially appropriately should have been selected with application, but 2.0 - 4.0 mm are desirable in practical.

【0026】

[Embodiment of the Invention]

In order furthermore to explain this invention in detail, Working Example is listed below, but this invention is not something where are limited in only these Working Example.

【0027】

(Working Example 1)

JP2001163640A

2001-6-19

## (1)合わせガラス用中間膜の製造

ポリビニルアセタール樹脂として、ブチラール化度 68.5 モル%、ビニルアセテート成分 1 モル%、重合度 1700 の PVB を用い、この PVB100 重量部に対し、トリエチレングリコールジ 2-エチルヘキサノエート 39 重量部を添加し、さらに、酢酸マグネシウム 10ppm 及び 2-エチル酪酸マグネシウム 20ppm を添加して、ミキシングロールで十分に熔融混練した後、プレス成形機を用いて 150 deg C で 30 分間プレス成形し、平均膜厚 0.38mm の合わせガラス用中間膜を得た。

【0028】

## (2)合わせガラスの製造

(1)で得られた中間膜を含水率が 0.3-0.5%になるように調整し、これを中間膜/PET(厚み 75  $\mu$ m)/中間膜の順に重ね合わせ、両側から透明な 2.4mm 厚のフロートガラスで挟み、これをゴムバッグ内に入れて 2.7kPa の真空度で 20 分間脱気した後、脱気したままの状態を 90 deg C のオーブンに移し、30 分間保持した。

このようにして予備接合された合わせガラスを、エアークレープ内で温度 140 deg C、圧力 1.3MPa の条件で 20 分間熱プレスし、合わせガラスを得た。

【0029】

## (3)評価

(1)で得られた中間膜の性能(Mg 及び K の含有量及び 90 度ピール接着力)及び(2)で得られた合わせガラスの性能(耐貫通性及び耐湿性)を以下の方法で評価した。

その結果は表 1 に示すとおりであった。

【0030】

## 1.Mg 及び K の含有量

(1)で得られた中間膜を、硫酸と硝酸で加熱分解し、この分解物を超純水で定容した後、ICP-AES 装置(日本ジャーレルアッシュ社製、ICAP-575 型)を用いて ICP 発光元素分析法(ICP-AES 法)により、中間膜中の Mg 及び K の含有量を測定した。

【0031】

## 2.90 度ピール接着力

## Production of (1) interlayer for laminated glass

As polyvinyl acetal-based resin, making use of PVB of degree of butyral formation 68.5mole %, amount of vinyl acetate component 1mole %, degree of polymerization 1700, vis-a-vis the this PVB100parts by weight, it added triethylene glycol di-2-ethyl hexanoate group 39parts by weight, furthermore, added magnesium acetate 10ppm and 2-ethylbutyric acid magnesium 20ppm, after with mixing roller melt mixing making fully, 30 minute compression molding it did with 150 deg C making use of compression molding machine, acquired interlayer for laminated glass of average film thickness 0.38mm.

【0028】

## Production of (2) laminated glass

In order for moisture content to become 0.3 - 0.5%, adjusting interlayer film which is acquired with (1), superposing this to order of interlayer film /PET (thickness 75 $\mu$ m)/interlayer film, from both sides putting between with float glass of transparent 2.4mm thickness, inserting this into rubber bag with degree of vacuum of 2.7 kPa 20 minute outgassing after doing, it moved to oven of 90 deg C with state while, outgassing it was done 30 minute kept.

laminated glass which prebonding is done, inside air type autoclave 20 min hot press was done with condition of temperature 140deg C, pressure 1.3MPa this way, laminated glass was acquired.

【0029】

## (3) appraisal

performance of interlayer film which is acquired with (1) (content and 90 degrees peel adhesion strength of Mg and K) and performance (penetration resistance and moisture resistance) of laminated glass which is acquired with (2) was appraised with the method below.

Result was as shown in Table 1.

【0030】

## 1.Mg and content of K

interlayer film which is acquired with (1), thermal decomposition was done with the sulfuric acid and nitric acid, Mg in interlayer film and content of K were measured due to ICP light emitting elemental analysis method (ICP-AES method) this decomposition product fixed after forgoing, making use of ICP-AES device (Nippon Jarrell-Ash Co., Ltd. \* supplied, ICAP-575 type) with ultrapure water.

【0031】

## 2.90 degrees peel adhesion strength

JP2001163640A

2001-6-19

(1)で得られた中間膜(厚み 0.76mm)、PET(厚み 100  $\mu$ m)及びガラス(2.5mm フロートガラス)を、図 1 に示す構成に積層して、幅 10mm、長さ 100 mm のピール接着力測定用試験片を得た。

この試験片を用い、テンシロン試験機で 20 $\pm$ 2 deg C、引張速度 500mm/分の条件下、図 2 に示す方法で引張試験を行い 90 度ピール接着力を測定した。

この試験では、中間膜とガラスとは常に直角になるように引張試験を行った。

上記 90 度ピール接着力が大きいほど中間膜とガラスとの接着性に優れ、90 度ピール接着力が小さいほど中間膜とガラスとの接着性に劣る。

【0032】

## 3.耐湿性

(2)で得られた合わせガラスを、50 deg C、相対湿度 95%の雰囲気下に 4 週間放置した後、取り出してすぐにガラス周縁端部の白化距離を測定した。

この白化距離が小さいほど耐湿性に優れ、白化距離が大きいほど耐湿性に劣る。

上記白化距離が 2mm 以下であれば良好とし、それを超えるものを不良とした。

【0033】

## 4.耐貫通性

(2)で得られた 300mm $\times$ 300mm の合わせガラスに、質量 2260 $\pm$ 20g、直径約 82mm の鋼球を鉛直上方より落下させ、供試体数の 50%が鋼球の貫通を防止できる落球高さを測定した。

この落球高さが高いほど耐貫通性に優れ、落球高さが小さいほど耐貫通性に劣る。

上記落球高さが 5m 以上であれば良好とし、それ未満のものを不良とした。

【0034】

## (実施例 2)

中間膜の製造において、接着力調整剤として、2-エチル酪酸マグネシウム 20ppm の代わりに、2-エチルヘキシル酸マグネシウム 30ppm を添加し

interlayer film which is acquired with (1) (thickness 0.76mm), PET (thickness 100 $\mu$ m) and laminating in configuration which shows glass (2.5 mm float glass), in Figure 1, it acquired peel adhesion strength measurement test piece of width 10mm, length 100mm.

Making use of this test piece, with Tensilon tester 20  $\pm$ 2 under condition of 2 deg C, strain rate 500mm/min, tensile test was done with method which is shown in Figure 2 and 90 degrees peel adhesion strength were measured.

With this test, in order interlayer film and glass to become normally right angle, tensile test was done.

When above-mentioned 90 degrees peel adhesion strength are large, it is superior in the adhesiveness of interlayer film and glass, when 90 degrees peel adhesion strength are small, it is inferior to adhesiveness of interlayer film and glass.

【0032】

## 3.moisture resistance

4 weeks after leaving, removing laminated glass which is acquired with the(2), under atmosphere of 50 deg C, relative humidity 95%, it measured whitening distance of glass surrounding edge end immediately.

When this whitening distance is small, it is superior in moisture resistance, when whitening distance is large, it is inferior to moisture resistance.

If above-mentioned whitening distance was 2 mm or less, it made satisfactory, it designated those which exceed that as defect.

【0033】

## 4.penetration resistance

In laminated glass of 300 mm X 300mm which are acquired with (2), steel sphere of mass 2260 $\pm$ 20g, diameter approximately 82 mm falling from perpendicular upward direction, it measured falling ball height where 50% of quantity of test sample can prevent the penetration of steel sphere.

When it is superior in extent penetration resistance where this falling ball height is high, the falling ball height is small, it is inferior to penetration resistance.

If above-mentioned falling ball height was 5 m or greater, it made satisfactory, designated those under that as defect.

【0034】

## (Working Example 2)

At time of producing interlayer film, as adhesion strength regulation agent, other than thing where 2-ethylbutyric acid magnesium 20ppm add 2-ethylhexanoic acid magnesium

JP2001163640A

2001-6-19

たこと以外は実施例 1 と同様にして中間膜及び合わせガラスを得た。

【0035】

(実施例 3)

中間膜の製造において、接着力調整剤として、2-エチル酪酸マグネシウムを 20ppm、2-エチルヘキシル酸マグネシウムを 20ppm 添加したこと以外は実施例 1 と同様にして中間膜及び合わせガラスを得た。

【0036】

(実施例 4)

中間膜の製造において、接着力調整剤として、2-エチル酪酸マグネシウム 20ppm の代わりに、ヘキサン酸カリウム 50ppm を添加したこと以外は実施例 1 と同様にして中間膜及び合わせガラスを得た。

【0037】

(比較例 1)

合わせガラスの製造において、PET を用いないで中間膜を 2 枚重ねたこと以外は、実施例 1 と同様にして合わせガラスを得た。

【0038】

(比較例 2)

中間膜の製造において、接着力調整剤として、酢酸マグネシウムの添加量を 25ppm 及び 2-エチル酪酸マグネシウムの添加量を 25ppm としたこと以外は実施例 1 と同様にして中間膜を得た。

次に、合わせガラスの製造において、PET を用いないで中間膜を 2 枚重ねたこと以外は、実施例 1 と同様にして合わせガラスを得た。

【0039】

(比較例 3)

中間膜の製造において、接着力調整剤を用いないこと以外は実施例 1 と同様にして中間膜及び合わせガラスを得た。

【0040】

(比較例 4)

中間膜の製造において、接着力調整剤として、酢酸マグネシウム 21ppm 及び酢酸カリウム 143ppm を添加したこと以外は実施例 1 と同様にし

30ppm to substituting, interlayer film and laminated glass were acquired with as similar to Working Example 1.

【0035】

(Working Example 3)

At time of producing interlayer film, as adhesion strength regulation agent, 2-ethylbutyric acid magnesium other than thing which 20 ppm adds 20 ppm, 2-ethylhexanoic acid magnesium interlayer film and laminated glass were acquired with as similar to Working Example 1.

【0036】

(Working Example 4)

At time of producing interlayer film, as adhesion strength regulation agent, other than thing where 2-ethylbutyric acid magnesium 20ppm add hexanoic acid potassium 50ppm to substituting, interlayer film and laminated glass were acquired with as similar to Working Example 1.

【0037】

(Comparative Example 1)

At time of producing laminated glass, without using PET, other than thing which 2 repeats interlayer film, it acquired laminated glass to similar to Working Example 1.

【0038】

(Comparative Example 2)

At time of producing interlayer film, as adhesion strength regulation agent, addition quantity of the magnesium acetate 25 ppm and other than thing where 2-ethylbutyric acid magnesium designate the addition quantity as 25 ppm interlayer film was acquired with as similar to Working Example 1.

Next, without using PET at time of producing laminated glass, other than thing which 2 repeats interlayer film, it acquired laminated glass to similar to Working Example 1.

【0039】

(Comparative Example 3)

At time of producing interlayer film, other than thing which does not use adhesion strength regulation agent interlayer film and laminated glass were acquired with as similar to Working Example 1.

【0040】

(Comparative Example 4)

At time of producing interlayer film, as adhesion strength regulation agent, other than thing which adds magnesium acetate 21ppm and potassium acetate 143ppm interlayer film

JP2001163640A

2001-6-19

て中間膜及び合わせガラスを得た。

and laminated glass were acquired with as similar to Working Example 1.

【0041】

[0041]

【表 1】

[Table 1]

		金属含有量 (pph)		90度ピール接着力 (N/cm)	落球高さ (m)	白化距離 (mm)
		Mg	K			
実施例	1	28	2以下	41	7.0	2
	2	87	2以下	43	6.5	2
	3	38	2以下	47	6.0	1
	4	10	50	61	5.5	2.5
比較例	1	28	2以下	42	3.5	2
	2	60	2以下	27	7.0	5
	3	2以下	2以下	88	4.5	0
	4	21	143	34	7.0	4

【0042】

表 1 から明らかなように、本発明による実施例の合わせガラス用中間膜は、ガラスとの接着性に優れ、また、本発明による実施例の合わせガラスは、耐貫通性に優れ、且つ耐湿性にも優れている。

【0042】

As been clear from Table 1, in this invention interlayer for laminated glass of Working Example is superior in adhesion strength of glass, in addition, in this invention the laminated glass of Working Example is superior in penetration resistance, at same time is superior even in moisture resistance.

【0043】

これに対して、PET を用いない比較例 1 の中間膜は耐貫通性に劣り、また、PET を用いないで耐貫通性を改善し、90 度ピール接着力が 40N/cm 未満の比較例 2 の中間膜は、接着力が適正でなく、耐湿性にも劣る。

【0043】

Vis-a-vis this, as for interlayer film of Comparative Example 1 which does not use the PET being inferior to penetration resistance, in addition, without using the PET, you improve penetration resistance, 90 degrees peel adhesion strength as for interlayer film of Comparative Example 2 under 40 N/cm, adhesion strength not to be a proper, are inferior to also the moisture resistance.

さらに、接着力調整剤を用いない比較例 3 の中間膜は、90 度ピール接着力が 80N/cm を超えて接着力が適正でなく、耐貫通性も劣る。

Furthermore, interlayer film of Comparative Example 3 which does not use adhesion strength regulation agent is inferior, 90 degrees peel adhesion strength exceeding 80 N/cm, adhesion strength not to be a proper, penetration resistance.

JP2001163640A

2001-6-19

【0044】

【発明の効果】

以上述べたように、本発明の合わせガラス用中間膜は、ガラスとの接着性に優れ、それを用いた合わせガラスは耐貫通性にも優れており、且つ耐湿性にも優れている。

従って、本発明の合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは、自動車用や建築用等の窓ガラス用等として好適に用いられる。

【0045】

【図面の簡単な説明】

【図1】

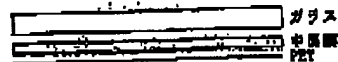
90度ピール接着力の測定において、用いられる試験片の構成を示す。

【図2】

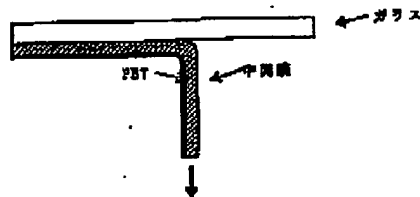
90度ピール接着力の測定における引張試験の方法を示す。

Drawings

【図1】



【図2】



【0044】

[Effects of the Invention]

As above expressed, interlayer for laminated glass of this invention is superior in adhesion strength of glass, laminated glass which uses that is superior even in penetration resistance, at same time is superior even in moisture resistance.

Therefore, as for interlayer for laminated glass and laminated glass of this invention, it is used for ideal as automotive and one for construction or other window glass etc.

【0045】

[Brief Explanation of the Drawing (s)]

[Figure 1]

At time of measuring 90 degrees peel adhesion strength, configuration of test piece which is used is shown.

[Figure 2]

method of tensile test in measuring 90 degrees peel adhesion strength is shown.

[Figure 1]

[Figure 2]